スピン偏極走査トンネル顕微分光(SP-STM-STs)の 原理と Mn(001)のスピン依存局所状態密度

山田 豊和・溝口 正

学習院大学理学部 ☎ 171-8588 東京都豊島区目白 1-5-1

(2004 年 10 月 4 日受理)

Spin-polarized Scanning Tunneling Microscopy/Spectroscopy and Quantitative Analysis Studied on Mn(001)

Toyokazu YAMADA and Tadashi MIZOGUCHI

Faculty of Science, Gakushuin University
1-5-1 Mejiro, Toshima-ku, Tokyo 171-8588

(Received October 4, 2004)

Development of spin-polarized scanning tunnel microscopy/spectroscopy (SP-STM/STS) is reviewed and the working principle of SP-STM/STS is discussed with paying special attention to the obtention of the spin-resolved local density of states (LDOS). We discuss the case of bct-Mn epitaxial films grown on Fe(001) whisker. The bct-Mn(001) layers couple antiferromagnetically with the adjacent layers and there is a spin-dependent LDOS peak above the Fermi level, to which highly-polarized two dz^2 surface states contribute. The highest lateral magnetic resolution obtained in this system is 0.4 nm. Performing a detailed analysis of the SP-STS measurements, we conclude that the bct-Mn(001) surface has a 60 ± 16 % polarization at the energy position of the spin-dependent LDOS peak.

1. はじめに

光学顕微鏡 (1590, Janssen) の分解能の下限は可視光の波長で決まるので、より波長の短い電子線を用いた電子顕微鏡が開発され、超高圧電子顕微鏡へと発展した。1982 年に Binning と Rohrer により全く異なる原理による走査型トンネル顕微鏡法 (STM) が発明された¹⁾。これは鋭い探針の先端を試料に非常に接近させ、両者の間を流れるトンネル電流を制御して走査する。より高い原子スケールの分解能を手軽に実現するには視覚よりも触覚のほうが優れていたと思うと面白い。

ところで、電子は素電荷とともに磁気モーメントの自然単位である 1 ボア磁子のスピン磁気モーメントを持っているから、スピン偏極したトンネル電流を磁性体試料に流し込めば、試料表面の局所的な磁気的情報を原子スケールの分解能で得ることが可能と考えられる。本解

説では、このスピン偏極トンネル顕微鏡および顕微分光法 (SP-STM/STS) についての概要をほぼ歴史にそって述べた後、我々が行った Fe(001) 単結晶面上の体心正方 Mn エピタキシャル薄膜についての実験と解析を紹介する。

1.1 CrO₂ 強磁性探針による SP-STS

最初の SP-STM は STM の発明から 8 年後の 1990 年に Basel 大学の Güntherodt の研究室の Wiesendanger らにより報告された²⁾。この初めての SP-STM を試みるにあたって彼らは強磁性探針として CrO₂ の薄膜を Si(111) に 1 μm 蒸着して用いた。彼らが試料として取り上げたのは反強磁性体心立方の Cr である。バルクの金属 Cr はスピン密度波で記述される複雑な磁気構造をもつが、STM で観測するのはあくまで表面の原子である。Cr (001) 表面に関しては面に垂直に磁気モーメントが揃い、その向きが 1 層ごとに (体心と頂角が) 反平行な反強磁性構造となっていることがスピン依存光電子分光の実験や計算から想定されていた^{3, 4)}。実験は標準的な STM

E-mail: 19710113@gakushuin.ac.jp

の手法にのっって行われた。非磁性の W 探針を用いたときは、段差は体心立方 Cr の格子定数の半分、すなわち (001) 格子面の間隔に相当する 0.14 nm であった。これに対し強磁性探針 CrO₂ を用いたときは 0.12 nm と 0.16 nm の段差が交互に観測された。

Slonczewski は 2 つの強磁性体間のトンネル接合のコンダクタンスは両者の磁化の向きが平行か反並行かによって $G_p = G_0(1+P)$ または $G_a = G_0(1-P)$ となることを導いている⁵⁾。

そのため同じトンネル障壁に対し強磁性接合のトンネル電流の値は 2 つの強磁性電極の磁気モーメントが平行か反平行かで異なってくる。STM ではトンネル電流が同じになるように制御されるので、前者では探針が遠のき、後者では近づく。したがってトポロジカルに同じ段差でも、探針の高さは交互に $h_1 = h + s$, または $h_2 = h - s$ になると解釈された (h と s は、各々、針試料間距離の非スピン偏極成分とスピン偏極成分にあたる)。ここで P は強磁性トンネル接合の有効スピン偏極率で

$$P = [\exp(A\sqrt{\phi s}) - 1] / [\exp(A\sqrt{\phi s}) + 1]$$

と表される。

半金属はバルク中では理論上 100 % 偏極しているが、表面では対称性が崩れるために期待するほどの高偏極度が得られているかが不明であり、その後 CrO₂ 探針は使用されていない。

1.2 光励起 p-GaAs 探針による SP-STM

1994 年にオランダの Nijmegen 大学の van Kempen の研究室から全く新しいタイプの SP-STM の報告が発表された⁶⁾。p-GaAs に適当な波長 (780 nm) の円偏光を照射すると、励起確率の違いにより伝導帯に励起された電子がスピン偏極する。表面に Cs を蒸着し NEA (負電子親和力) の状態を実現することによって、スピン偏極した電子ビームを取り出す実験を Pierce が成功させた⁷⁾。この原理を SP-STM 探針に応用するというアイデアである。彼らは着実に仕事をすすめ、それらを報告している⁸⁻¹¹⁾。これに追随する形で、我が国においても同様の研究が膨大なプロジェクト予算のもとに行われてきたが、実用化のめどはたっていない^{12, 13)}。

1.3 Fe/W, Gd/W 探針による SP-STM/STS

1993 年以降 Wiesendanger はハンブルグに新しい研究室を築き、集められた優秀な若手研究者が精力的に活動を開始した。Bode らは非磁性 Pt/Ir tip を用いてトンネル電流の微分をバイアス電圧に交流変調をかけて変えながら lock-in amp. で測定することによって局所電子状態密度 (LDOS) を求めた。この手法で Gd (0001) の STS を行い、 d_{z^2} -like な表面状態のピークがフェルミ準位の上下に交換相互作用で分裂しているのを観測した¹⁴⁾。続

いて、W tip に Fe を蒸着し軸に垂直方向に磁場をかけて磁化した探針を用いて SP-STs 実験を行った¹⁵⁾。これが Fe/W tip を用いた実験の最初の報告で、Fe は約 10 ML である。

強磁性原子を W tip に蒸着した Fe/W (または Gd/W) 探針を用いて W (110) 上の Mn 1 原子層の 2 次元反強磁性配列が 16 K で実空間において原子分解能で観察された¹⁶⁾。探針の先端の磁化が試料表面に平行な Fe/W tip で原子配列の 2 倍周期のコントラストが得られている。Gd (7 ML) / W tip は試料面に対しほぼ垂直な磁化方向を持っていて、コントラストは Fe/W tip を用いた場合に比べ非常に弱いので Mn/W (110) のスピンは面内をむいていると考えられる¹⁷⁾。

Fe/W tip を用いた Co (0001) に関する SP-STs が Okuno らによって報告されている¹⁸⁾。

この SP-STs から表面状態をより正確にもとめる解析法を含めて、我々の成果に関しては 3 節で改めて述べることにする。

1.4 軟磁性リングによる SP-STs

Bode の Fe/W 探針の場合でもそうであったが、先端があまり鋭いと SP-STM の実験はうまくいかない。この点をさらにすすめて意外にも巨視的な大きさ (直径 2 mm) の軟磁性体リングの縁からのトンネル電流によって STM を試みて成功したのが Halle の Max Plank 研究所、Kirschner のグループの Schlickum と Wulfhekel である¹⁹⁾。彼らは CoFeSiB アモルファス箔 (厚さ 25 μm) から化学エッチングによりリングを作り、これにコイルをまいて 15~30 kHz の交流で磁化を反転させ、これに同期したトンネル電流の変化をとらえている。彼らはリングの縁を磨いた際、nm スケールの突起ができてこのような高分解能の画像が得られたのではないかと推察している。しかしこの手法では試料面は非常に平坦でなければならない。

2. スピン偏極 STM/STS の原理

Fig. 1 に簡単な SP-STs の説明図を示す。Fig. 1 (a, b) は試料磁区と非磁性探針の間のトンネル電子流を示し、Fig. 1 (c, d) は試料磁区と磁性探針の間のトンネル電子流を示す。探針から試料に電子がトンネル効果によって流れるとき、スピンの反転は無視できるということが SP-STs の前提である。非磁性探針を用いた場合、針の LDOS にスピン偏極はない。試料に正電圧をかけた場合、探針のフェルミ準位から試料の非占有 LDOS へトンネルする。Fig. 1 (a) ではより多くの spin-up 電子がトンネルし、Fig. 1 (b) ではより多くの spin-down 電子がトンネルする。しかし、全トンネル電子の数はどちらの場合

Fig. 1. Schemes of the tunneling process from a non-magnetic tip [(a) and (b)] and a magnetic tip [(c) and (d)] to a magnetic sample. The tip and the sample LDOS are shown as well. Since a positive bias voltage has been applied to the sample, electrons tunnel from the tip Fermi energy to the sample unoccupied states. Transitions of spin-up and spin-down electrons are shown. Between (a, c) and (b, d) the sample magnetization directions are different. E_F denotes the Fermi energy. $\uparrow$ and $\downarrow$ denote the spin-up and the spin-down electrons, respectively. $\vec{M}$ denotes the magnetization vector.

合も同じである。ここで、非磁性探針を磁性探針へ変える (c, d)。磁性探針のフェルミ準位では、spin-up 電子の LDOS, D_t , は spin-down 電子の LDOS, D_t , に比べ大きいとする。正電圧を試料へかけた時、探針のフェルミ準位の spin-up 電子は試料の非占有 LDOS へトンネルする。試料と探針の磁化が反平行の場合 (c) と平行の場合 (d) を比べると、(c) では試料の spin-up 状態密度または針のフェルミ準位の spin-down 状態密度が小さいのに対し、(d) では試料と針の spin-up 状態密度が共に大きいので、(d) の方が全トンネル電流は大きくなる。SP-STM/STS では、この電子の変化量から試料の磁気情報をとらえることになる。

以上の定性的説明をより定量的に扱ってみよう^{20, 21)}。試料の探針に対するバイアス電圧を V 、トンネル電流を I とする時、微分コンダクタンスはトンネル確率 T を用い

$$dI/dV \propto T [D_t(E_F)D_s(E_F+V) + D_t(E_F+V)D_s(E_F)], \quad (V < 0) \quad (1)$$

又は

$$dI/dV \propto T [D_t(E_F+V)D_s(E_F) + D_t(E_F)V D_s(E_F)], \quad (V < 0) \quad (2)$$

と書ける。ここで D_t , D_s は探針または試料の局所状態密度, $\uparrow$, $\downarrow$ はスピンの up または down 状態を示す。トンネル確率 T は、探針と試料の間の距離 z とバイアス電圧 V の関数で

$$T(z, V) = a \cdot \exp \left[-bz \left(\Phi \pm \frac{V}{2} \right)^{\frac{1}{2}} \right] \quad (3)$$

と表される²²⁾。ここで Φ は仕事関数, a , b は比例係数とする。実験では、トンネル電流のバイアス電圧依存性を測定し、数値微分により dI/dV カーブを得る。この実験結果から試料 (または探針) のスピンに依存した局所状態密度 $D(E_F+V)$, $D(E_F)$ を求めることができればよい。そのためには先ず $T(z, V)$ を知る必要がある。 T は z に敏感である。そこで z を固定して V を変化させ、 b , Φ を実験的に求めるのがよい。 z を固定するには適当なバイアス電圧 V_0 でトンネル電流が一定値になるように z を調整する。この時の条件を set point とよぶ。set point が定まったらフィードバックの回路を切って z を固定し、 V を変化させて測定したトンネル電流 I を数値微分して dI/dV を得る。 dI/dV は $T(z, V)$ のみでなく局所状態密度が関係するが、こちらは特定のエネルギーに相当するバイアス電圧に対して表面状

態のピークを示すことが多い。このピークを適当なガウス関数で近似して十分広い範囲で成立する式 (3) の形をまず求めることが有効である。その上で観測された dI/dV を T で割れば

$$(dI/dV)/T \propto [D_t D_s + D_t D_s] \quad (4)$$

を得る。 $V > 0$ であれば $D_t(E_F)$, $D_t(E_F)$ は定数である。もし $D_t \gg D_t$ であれば、我々は試料のフェルミ準位以上の空準位の局所状態密度 $D_s(E_F + V)$ を求めることができる。Fe/W 探針の場合 D_t を無視することはできない。探針のスピンの偏極度を

$$P_t(E_F) = \frac{D_t(E_F) - D_t(E_F)}{D_t(E_F) + D_t(E_F)} \quad (5)$$

と表せば

$$[(dI/dV)/T]_1 \propto D[(1+P_t)D_s + (1-P_t)D_s] \quad (6)$$

と表すことができる。ここで D は D_t と D_t の平均である。もし探針の磁化の向きを反転して測定を行うことができれば

$$[(dI/dV)/T]_2 \propto D[(1-P_t)D_s + (1+P_t)D_s] \quad (7)$$

を得る。この2つの実験結果より非対称性

$$A = \frac{[(dI/dV)/T]_1 - [(dI/dV)/T]_2}{[(dI/dV)/T]_1 + [(dI/dV)/T]_2} \quad (8)$$

を実験から求め、これと P を用いて D_s , D_s を分離して求めることができる。

次節で述べる Mn/Fe(001) 試料の場合は、探針の磁化は変えずに、試料のスピンの向きが奇数層と偶数層で反平行となっていることを巧みに用いて非対称性 A を求めた。

スピンの up, down 状態を探針の磁化方向を基準として決めれば、試料の磁化方向が探針の磁化方向と θ の角をなしているとき $\cos\theta$ の成分がコントラストに効いてくる。 $\theta=0$ または π のとき最大のコントラストを得るが、一般にはその条件に達するまで探針を変えては数多くの測定をくりかえし行って、丹念に解析を行う必要がある。

3. Fe(001)whisker 上の Mn(001)エピタキシャル膜の SP-STs

3.1 試料と探針作成

これより我々の SP-STs 研究について具体的な実験結果を示しながら述べていく^{20, 21, 23, 24}。我々のグループは、2000 年よりオランダ・Nijmegen 大学、van Kempen 教授と共同で SP-STM/STS の開発・研究を行ってきた。

実験装置は、準備真空槽と測定真空槽からなる^{23, 24}。

前者の到達真空度は 1×10^{-8} Pa、後者は 5×10^{-9} Pa である。準備真空槽で試料の清浄化、膜作成、針作成を行った。測定真空槽で、SP-STM/STS の実験を室温で行った。

磁性試料として我々は Fe(001) 上に 370 K で成長させた Mn(001) エピタキシャル薄膜を使用した。反強磁性の Mn はバルク中では大変に複雑な構造を持つが、この Mn 膜は単純な bct で反強磁性結合していることが非局所技術により報告されている²⁵。Mn 膜の下地として Fe(001)-whisker を使用した。500 μm 以上の単磁区を持ち、不純物も少なく、閉磁区を作っており漏れ磁場が小さいからである。室温から 1020 K への加熱と 750 eV でのアルゴンイオンスパッタリングを行い、鉄表面の不純物を酸素のみとし、その量が 1% 以下であることを STM 原子像とオージェ分光法から確認した²³。この表面に Mn (純度 99.999%) を 0.3 ML/分で 370 K に加熱しながら、 4×10^{-8} Pa で蒸着した。

Bode らにより Fe/W 探針を用いて試料の磁気情報が検出できることが報告され、作成も比較的容易と思われた。我々も、当初約半年をかけて、この磁性探針の作成方法を調べた。作成方法の詳細は研究室ごとに独自に工夫されてきている。最終的に、我々の作成方法は、超高真空中で 2–10 nm の鉄薄膜を、無磁場中で、加熱した W 探針に蒸着させることで、室温においても再現性良くスピン偏極電流を検出できる針となることを見つけた(作成された磁性探針は、探針試料間の物質移動を防ぐため注意深く試料へ接近させる)。この鉄膜は面内の磁気異方性を持ち、針膜の磁化方向は試料表面と平行である。試料として用いた Mn 膜は面内磁化を持つことがスピン偏極走査電子顕微鏡の結果より報告されている。探針と試料の磁化方向を θ とすると、スピン偏極トンネル電流は、探針と試料の磁化方向が完全に 90 度でない限り、強弱の違いはあるが、常に検出される。我々は、50 以上の鉄膜磁性探針を作成し研究してきた^{20, 21, 24}。我々の針作成方法では針磁化方向を制御できないが、最大コントラストを得た際は、針と試料の磁化方向が(ほぼ)平行又は反平行であると考えられる。この解説中では、実験で得た SP-STs データ中、最大の磁気コントラストを示した磁性探針を用いての結果を使用して、SP-STs から定量値を得る方法について議論する。

3.2 Mn 薄膜の鉄原子との混合、結晶構造、電子構造

我々は Mn 膜を用いての SP-STs とその Mn 膜自身の磁性の研究を行ってきたが、これを行う前に試料の Mn 膜の成長、結晶構造、下地の鉄原子との混じり具合、平均化された LDOS について、非磁性 W 探針を用いて丁寧に研究を行った²³。Fig. 2 にその結果を示す。なぜなら、これらは Mn 膜の磁性に密接に関連しているからで

Fig. 2. STS measurement on Fe(001) covered with 7.2 ML Mn at 370 K. (a) is a topographic image obtained at a set point of $V_s = -0.5$ V, $I = 0.5$ nA. Scan size is 150×150 nm². Five different levels are exposed on the surface. (b) shows the dI/dV curves representative of level 6 to 9. These curves are averages of typically 10 single curves. (c) shows the dI/dV map at $+0.2$ V measured at the same area as (a). Numbers in (a) and (c) denote the stacking numbers of the Mn layers. (d) dI/dV curves measured on Mn films thicker than the fourth layer (black dots). The set point of $V_s = -0.5$ V, $I = 0.5$ nA was used and curves are averages of typically 20 single curves. A fit of the tunneling probability function to the dI/dV curve is also shown (T). The dI/dV curve normalized by this T , i.e., $(dI/dV)/T$, reveals a strong peak around $+0.8$ eV and a weak peak at -0.6 eV.

ある。結果、マンガン膜は体心正方の結晶構造を持っていた。マンガン膜の1層目、2層目、3層目は各14%、4%、2%鉄原子と混合しており、4層目以上は、純粋なマンガン原子から成っていた。パネル(a)は形状像を示す。表面に6層目から9層目が析出している。この表面各層において、STSを測定、パネル(b)に示すサンプルの微分伝導(dI/dV)曲線を得た。6層目から9層目まで全て同じ形である。パネル(c)に $+0.2$ Vでの dI/dV 像を示す。各Mn層の間でコントラストは見られない。ステップ位置はテラスと異なるLDOSを持つためコントラストを生じている(ステップでは対称性が崩れるため)。試料のLDOSを探るためトンネル確率関数(T)で dI/dV カーブを規格化した(Fig. 2 (d))。 T は、実験で測定された $+2$ V以上と -1 V以下の dI/dV 値へ

フィットして得た。4層目以上のMn層は -0.5 Vと $+0.8$ VにLDOSピークを持つことがわかった²³⁾。

3.3 Mn膜の磁気構造

この非磁性W探針を用いてのMn膜の成長、混じり具合、結晶構造、電子構造の結果より、磁気構造を探るには4 ML以上のMn膜が適していると判断した。純粋なMnから成り、同じLDOSを持ち、表面に複数の層が析出するからである。ここで探針を鉄膜磁性探針へ変えて、Fe(001)-whisker上に10 MLのMnを蒸着した表面を観察、STS測定を行った。Fig. 3 (a)は形状像である。8層目から12層目が表面に析出している。Fig. 3 (b)中の実線と点線はMn奇数層と偶数層を各々示す。非磁性W探針を用いて得た dI/dV カーブは奇数と偶数層で全く差を示さなかったが、磁性探針で得た dI/dV カー

Fig. 3. SP-STM and SP-STs measurements on Fe(001) covered with 10 ML Mn at 370 K. These measurements were performed with an Fe-coated W tip. (a) is the topographic image which was obtained at $V_s = -0.5$ V, $I = 0.5$ nA. Scan size is 100×100 nm² and five layers are exposed. Numbers in (a) and (c) denote the stacking numbers of the Mn layers. (b) shows dI/dV curves as a function of the sample bias voltage obtained on the Mn layers in (a). dI/dV curves obtained on even (odd) Mn layers are shown as solid (dashed) curves, which were numerically obtained from $I(V)$ curves measured at a set point of $V_s = -0.5$ V, $I = 0.5$ nA. (c) shows the dI/dV map at +0.2 V measured at the same area as (a). (d) a dI/dV map at +0.4 V was obtained on 7.2 ML Mn on Fe(001) with an Fe-coated W tip at a set point of $V_s = -0.6$ V, $I = 0.5$ nA (70×70 nm², 0.25 nm/pixel). The magnetic contrast reverses across the hidden step. (e) An averaged line profile across the hidden step in the dI/dV map is shown.

ブの奇数層と偶数層は明らかな差をフェルミ準位以上で示した。+0.2 Vでの dI/dV 像は強い白黒コントラストを層間で示す (Fig. 3 (c))。明らかに、コントラストは2層周期で振動している。この振動するコントラストはちょうど4層目から始まっていることも確認した²⁶⁾。この図では奇数層が暗く、偶数層が明るく見えているが、これは必ずそうになっているわけではない。つまり、異なる鉄膜磁性探針を用いては偶数層が暗く見える場合もあった。

我々は、この dI/dV 像中のコントラストは Mn(001) 膜の層状反強磁性磁化により生じていることを以下の点より結論づけた。(1) dI/dV 像中のコントラストの生じ

ている層 (>3 ML) と周期 (2 ML) は以前に他の非局所技術により得られた結果と一致する。(2) このコントラストは非磁性 W 探針では観察されず、鉄膜磁性探針で観察された。(3) コントラストの反転を異なる鉄膜磁性探針で観察した (これは針磁化方向が無作為に決定されることを意味する)。表面において各 Mn 層は上下の Mn 層と反強磁性的に結合している。

下地の鉄ステップは、Mn 膜上で 0.02 nm のステップとして確認できる。この位置で Mn 層の磁化は反転している。つまり反強磁性磁壁を作成していることを見つけた。Fig. 3 (d) はその領域での磁気像である。矢印の間に下地の鉄ステップがある。この磁化反転領域の幅は約

0.4 nm である (Fig. 3 (e))^{20, 24}). これが我々の確認した SP-STs の最高磁気分解能である。

$I(V)$ カーブ, dI/dV カーブ中に磁気コントラストが観察できるが, その原因はなんであろうか. dI/dV カーブをトンネル確率関数で規格化することにより LDOS ピークを再現できる. 非磁性 W 探針では, 4 層目以上の Mn 層で -0.5 V と $+0.8$ V に LDOS ピークを見つけた. 同様にして, 鉄膜磁性探針を用いて Mn 奇数層と偶数層から得た dI/dV カーブに対して各々トンネル確率関数 (T) を求め, 規格化した (Fig. 5 (a)). $(dI/dV)/T$ カーブは, -0.5 V と $+0.8$ V に同様に LDOS ピークを得た (黒は Mn 奇数層, 灰は Mn 偶数層を指す). このピークは Mn 層 2 層ごとにピーク強度が振動している. つまり -0.5 V と $+0.8$ V の LDOS ピークはスピン偏極した電子状態密度とわかった. このスピン偏極 LDOS ピークが dI/dV 像中の磁気コントラストの原因であった. バンド構造計算を行い, このスピン偏極 LDOS ピークは高スピン偏極 d_{x^2} 表面状態によることがわかった²⁰).

3.4 Mn(001)表面のスピン偏極度を得る手法

得られた SP-STs データから如何に定量的な値を出すかは重要な課題の一つである. しかし, 既に発表された dI/dV カーブを直接用いて定量値を得る方法には曖昧さが含まれていることを我々は確認した (Fig. 4). この方法によれば, Mn の奇数層と偶数層の dI/dV の非対称性を取ると, この非対称性が試料と針の偏極度の積になる.

Fig. 4. (a) and (b) show dI/dV measurements obtained with an Fe-coated W tip at negative- ($V_s = -0.5$ V, $I = 0.5$ nA) and positive-voltage set point ($V_s = +0.5$ V, $I = 0.5$ nA), respectively, representative of the even (grey curve) and the odd layers (black curve) (>3 ML). (c) shows the asymmetry in the dI/dV curves. Dotted and solid curves are obtained from (a) and (b), respectively.

非対称性は, $A_{dI/dV} = [dI/dV_{\text{even}} - dI/dV_{\text{odd}}] / [dI/dV_{\text{even}} + dI/dV_{\text{odd}}]$ と定義される. しかし dI/dV は針試料間距離のスピン依存性を含んでいる. つまり STs 測定時, 異なる磁区上で針試料間距離が異なる場合, その影響が dI/dV カーブ, そして $A_{dI/dV}$ に現れる. Fig. 4 は STs 測定前に針試料間距離を決める際に -0.5 V を選んだ場合と $+0.5$ V を選んだ場合での Mn 奇数層 (黒線) と偶数層 (灰線) の dI/dV カーブである. 明らかに, 磁気コントラストの生じている箇所が異なる. パネル (a) では正電圧側に, パネル (b) では負電圧側に磁気コントラストが生じている. これより非対称性を求めればパネル (c) に示すように全く異なる結果が得られ, 信頼できる試料の偏極度は得られない.

我々は, このスピン依存針試料間距離の影響を除くために $(dI/dV)/T$ カーブを用いた (Fig. 5 (a))²¹). 異なる針試料間距離で得た $(dI/dV)/T$ カーブと異なる Fe/W 探針を用いて得た $(dI/dV)/T$ カーブより, 非対称性

$$A_{(dI/dV)/T} \equiv [(dI/dV)/T_{\text{even}} - (dI/dV)/T_{\text{odd}}] / [(dI/dV)/T_{\text{even}} + (dI/dV)/T_{\text{odd}}]$$

を求めた. その結果を Fig. 5 (b) に示す. $A_{dI/dV}$ と異なり全ての $A_{(dI/dV)/T}$ カーブは似たような振る舞いを示している. 特に, フェルミ準位上では, 3 つのデータは一定値約 10 % を示した. つまりスピン依存針試料間距離の影響は取り除かれたと考える. では, この非対称性は何を意味するのか. $(dI/dV)/T$ カーブの式を書き直す. 正電圧側に関して考える.

$$\begin{aligned} (dI/dV)/T_{\text{even}} &= D_{Fe}(E_F) \cdot D_{Mn}^{\text{min}}(V) + D_{Fe}(E_F) \cdot D_{Mn}^{\text{maj}}(V) \\ (dI/dV)/T_{\text{odd}} &= D_{Fe}(E_F) \cdot D_{Mn}^{\text{maj}}(V) + D_{Fe}(E_F) \cdot D_{Mn}^{\text{min}}(V) \end{aligned} \quad (9)$$

$D_{Fe}(E_F)$ ($D_{Fe}(E_F)$) は鉄膜磁性探針のフェルミ準位での majority (minority) バンドを表す. 鉄は強磁性なので majority spin は spin-up, minority spin は spin-down と定義する. $D_{Mn}^{\text{maj}}(V)$ ($D_{Mn}^{\text{min}}(V)$) は, 反強磁性体心正方 Mn 膜の副格子の majority (minority) バンドの $E_F + V$ での LDOS を表す. 我々は, 針の spin-up (spin-down) 電子は, Mn 奇数層の minority (majority) バンドと Mn 偶数層の majority (minority) バンドへトンネルすると仮定する. そして, 非対称性は以下になる.

$$\begin{aligned} A_{(dI/dV)/T} &= \frac{D_{Fe} - D_{Fe}}{D_{Fe} + D_{Fe}} \cdot \frac{D_{Mn}^{\text{min}} - D_{Mn}^{\text{maj}}}{D_{Mn}^{\text{min}} + D_{Mn}^{\text{maj}}} \\ &= P_I(E_F) \cdot P_S(E_F + eV) \end{aligned} \quad (10)$$

つまり, 試料の偏極度と針のフェルミ準位での偏極度の積となる. 試料の偏極度を求めるには針の偏極度が知りたい. 式 (9, 10) を書き直して Mn 膜のスピン分解 LDOS は以下に書き表せる.

Fig. 5. (a): dI/dV curves (solid curves, averaged over 30 single curves) normalized by voltage-dependent tunneling probability functions (T) were obtained with an Fe-coated W tip on Mn films thicker than three layers. Solid and dotted curves are the dI/dV and the $(dI/dV)/T$ curves, respectively. Black and grey curves are representative of the odd and the even layers, respectively. T (dashed curves) were obtained by a fit to the background of the dI/dV curves. $(dI/dV)/T$ curves are shown as dotted curves. (b) gives the asymmetry of the $(dI/dV)/T$ curves obtained on the even and the odd Mn layers as a function of the sample bias voltage. Black and white dots were obtained at a negative voltage set point ($V_s = -0.5$ V, $I = 0.5$ nA). Triangles were obtained at a positive voltage set point ($V_s = +0.5$ V, $I = 0.5$ nA). Black dots and triangles were obtained by the same Fe-coated W tip. White dots were obtained by a different Fe-coated W tip. (c) The majority (grey) and minority (black) LDOS of Mn(001) obtained by experimentally obtained $(dI/dV)/T$ curves with a tip polarization at the Fermi level of 10 %, 15 % and 44 % are shown. (d) shows the majority (grey) and minority (black) LDOS of Mn(001) obtained by band structure calculations. “SS”, “SR”, and “B” denote surface states, a surface resonance, and bulk states, respectively.

$$D_{Mn}^{maj} = \frac{1}{c} \left(1 - \frac{A(dI/dV)/T}{P_t} \right) [(dI/dV)/T]_{ave}$$

$$D_{Mn}^{min} = \frac{1}{c} \left(1 + \frac{A(dI/dV)/T}{P_t} \right) [(dI/dV)/T]_{ave} \quad (11)$$

$[(dI/dV)/T]_{ave}$ は、 $(dI/dV)/T_{even}$ と $(dI/dV)/T_{odd}$ の平均であり、 c は D_{Fe} と D_{Fe} の和である。(つまり、 $c = 2D_{io}$) 式 (11) を用いて実験的に Mn 表面のスピ分解 LDOS を求められる。試料のスピ分解 LDOS を再現するのに針の偏極度が最も重要な要素であることがわかった。その結果を、Fig. 5 (c) に示す。Minority band への影響は少ないが、majority バンドは針偏極度により大きく変

化している。10 % ではへこみが生じ、15 % ではほぼ平らで、44 % ではピークが確認できる。この majority band の振るまいとバンド構造計算の結果を比較して、我々の探針のスピ分解度が見積もることができる。Fig. 5 (d) にバンド構造計算により得た Mn のスピ分解 LDOS を示す。3 つのピークがあり、フェルミ準位に近い方から表面状態 (SS)、表面共鳴 (SR)、バルク状態 (B) である。比較より、我々の鉄膜磁性探針の偏極度は $18 \pm 5\%$ と求まった。この針偏極度値で実験より得られた $A(dI/dV)/T$ を割ることにより Mn (001) 表面の $+0.8$ V のスピ分解 LDOS ピーク位置での偏極度は $60 \pm 16\%$ と求

まった^{21, 24)}。

4. お わ り に

理論的にはハートリー-フォック近似以来、電子状態はスピン状態を含めて記述されている。近年の理論計算の進歩はめざましく、信頼に足る第一原理計算の結果も蓄積されてきた。しかるに、スピンに依存した電子状態をもとめる実験はスピン状態を分離しない実験にくらべると格段にむずかしい。スピンに依存した固体表面の電子状態を原子スケールの分解能で探ることができるスピン偏極走査トンネル顕微鏡分光 (SP-STM/STS) はきわめて有効な実験手法である。

本論文ではその原理と基本的な解析法を解説した。また実際にわれわれが最近行った Fe(001) 上にエピタキシャル成長させた bct-Mn 膜に対する実験と解析結果を報告し、SP-STS の実験からスピン依存局所状態密度を求める過程と結果を具体的に紹介した。また SP-STM/STS の面内磁気分解能が 0.4 nm に達することが確認できた。

今後この分野は急速に発展すると思われるが、スピンに依存した物理をしっかりと身につけ、実験を丹念に行わなければ信頼にたる成果は望めないことを身にしみて感じている。

文 献

- 1) G. Binnig, H. Rohrer, Ch. Gerber and E. Weibel: Phys. Rev. Lett. **49**, 57 (1982).
- 2) R. Wiesendanger, H.-J. Guntherodt, G. Guntherodt, R.J. Gambino and R. Ruf: Phys. Rev. Lett. **65**, 247 (1990); J. Vac. Sci. Technol. **B 9**, 519 (1991).
- 3) F. Meier, D. Pescia and T. Schriber: Phys. Rev. Lett. **48**, 645 (1982).
- 4) S. Blugel, D. Pescia and P.H. Dederichs: Phys. Rev. B. **39**, 1392 (1989).
- 5) J.C. Slonczewski: J. Phys. C **8**, 1629 (1988); Phys. Rev. B. **39**, 6995 (1989).
- 6) M.W.J. Prins, M.C.M.M. van der Wielen, R. Jansen, D.L. Abraham and H. van Kempen: Appl. Phys. Lett. **64**, 1207 (1994).
- 7) D.T. Pierce, F. Meier and P. Zurcher: Appl. Phys. Lett. **26**, 670 (1975).
- 8) M.W.J. Prins, R. Jansen, R.H.M. Groeneveld, A.P. van Gelder and H. van Kempen: Phys. Rev. B. **53**, 8090 (1996).
- 9) M.W.J. Prins, R. Jansen, R.H.M. Groeneveld, A.P. van Gelder and H. van Kempen: Phys. Rev. B. **53**, 8105 (1996).
- 10) R. Jansen, M.W.J. Prins and H. van Kempen: Phys. Rev. B. **57**, 4033 (1998).
- 11) R. Jansen, R. Schad and H. van Kempen: J. Magn. Magn. Mater. **198/199**, 668 (1999).
- 12) Y. Suzuki, W. Nabhan, R. Shinohara, K. Yamaguchi and T. Katayama: J. Magn. Magn. Mater. **198/199**, 540 (1999).
- 13) 澤村 誠, 丸山倫英, 武笠幸一: 日本応用磁気学会誌 **23**, 1165 (1999).
- 14) M. Bode, M. Getzlaff, S. Heinze, R. Pascal and R. Wiesendanger: Appl. Phys. A **66**, S 121 (1998).
- 15) M. Bode, M. Getzlaff and R. Wiesendanger: Phys. Rev. Lett. **81**, 4256 (1998).
- 16) S. Heinze, M. Bode, A. Kubetzka, O. Pietzsch, X. Nie, S. Blugel and R. Wiesendanger: Science **288**, 1805 (2000).
- 17) O. Pietzsch, A. Kubeazka, M. Bode and R. Wiesendanger: Phys. Rev. Lett. **84**, 5212 (2000).
- 18) S.N. Okuno, T. Kishi and K. Tanaka: Phys. Rev. Lett. **88**, 066803 (2002).
- 19) U. Schlickum, W. Wulfhekkel and J. Kirschner: Appl. Phys. Lett. **83**, 2016 (2003).
- 20) T.K. Yamada, M.M.J. Bischoff, G.M.M. Heijnen, T. Mizoguchi and H. van Kempen: Phys. Rev. Lett. **90**, 056803 (2003).
- 21) T.K. Yamada, M.M.J. Bischoff, G.M.M. Heijnen, T. Mizoguchi and H. van Kempen: Jpn. J. Appl. Phys. **42**, 4688 (2003).
- 22) V.A. Ukraintsev: Phys. Rev. B. **53**, 11176 (1996).
- 23) T.K. Yamada, M.M.J. Bischoff, T. Mizoguchi and H. van Kempen: Surf. Sci. **516**, 179 (2002).
- 24) T.K. Yamada: Ph. D. Thesis, Gakushuin University, Tokyo, Japan, (2004). (http://www.gakushuin.ac.jp/univ/sci/top/jimu-info/GT_Yamada.pdf).
- 25) D.A. Tulchinsky, D.T. Pierce, A.D. Davies, J.A. Stroscio, J. Unguris and R.J. Celotta: J. Magn. Magn. Mater. **212**, 91 (2000); T.G. Walker and H. Hopster: Phys. Rev. B. **48**, 3563 (1993); S. Andrieu, M. Finazzi, Ph. Bauer, H. Fischer, P. Lefevre, A. Traverse, K. Hricovini, G. Krill and M. Piecuch: Phys. Rev. B. **57**, 1985 (1998).
- 26) T.K. Yamada, M.M.J. Bischoff, T. Mizoguchi and H. van Kempen: Appl. Phys. Lett. **82**, 1437 (2003).